



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH

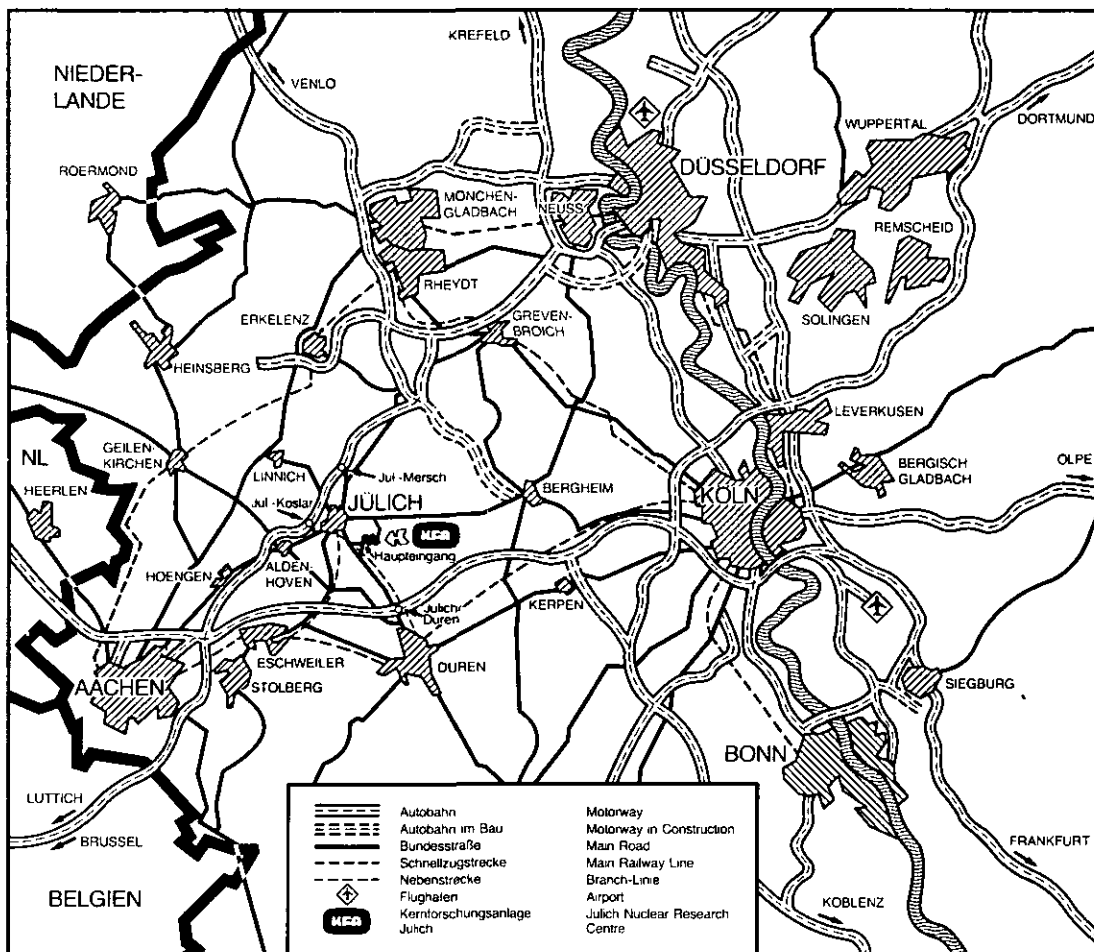
Institut für Chemische Technologie der Nuklearen Entsorgung

**Verfahren zum Zerlegen
graphitischer Reaktor-Brennelemente
mittels Hochdruckwasserstrahl**

von

D. Thiele

Jül-Spez-378
November 1986
ISSN 0343-7639



Als Manuskript gedruckt

Spezielle Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 378

Institut für Chemische Technologie der Nuklearen Entsorgung Jül-Spez-378

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH

Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)

Telefon: 02461/610 · Telex: 833556-0 kf d

**Verfahren zum Zerlegen
graphitischer Reaktor-Brennelemente
mittels Hochdruckwasserstrahl**

von

D. Thiele

16.1.2014
von Verfasser

Kurzfassung

In der Eingangsstufe der Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen wird der Graphit vom Schwermetall getrennt.

Das hier vorgeschlagene Verfahren arbeitet mit einem rotierenden Hochdruckwasserstrahl, der die Brennstoffpartikel unbeschädigt aus der Graphitmatrix herauswäscht und mit einem Sieb von der Graphitsuspension trennt. Eine Verflüchtigung radioaktiver Isotope einschließlich C-14 wird auf diese Weise vermieden.

Verfahren zum Zerlegen graphitischer Reaktor-Brennelemente mittels Hochdruckwasserstrahl

D. Thiele

Institut für Chemische Technologie der Nuklearen Entsorgung
Kernforschungsanlage Jülich GmbH

1. Einleitung

Die Kugel-Brennelemente des gasgekühlten Hochtemperaturreaktors (HTR) enthalten den Kernbrennstoff in dreifach beschichteten Kügelchen (Partikeln), homogen verteilt in einer Graphitmatrix (siehe Abb. 1).

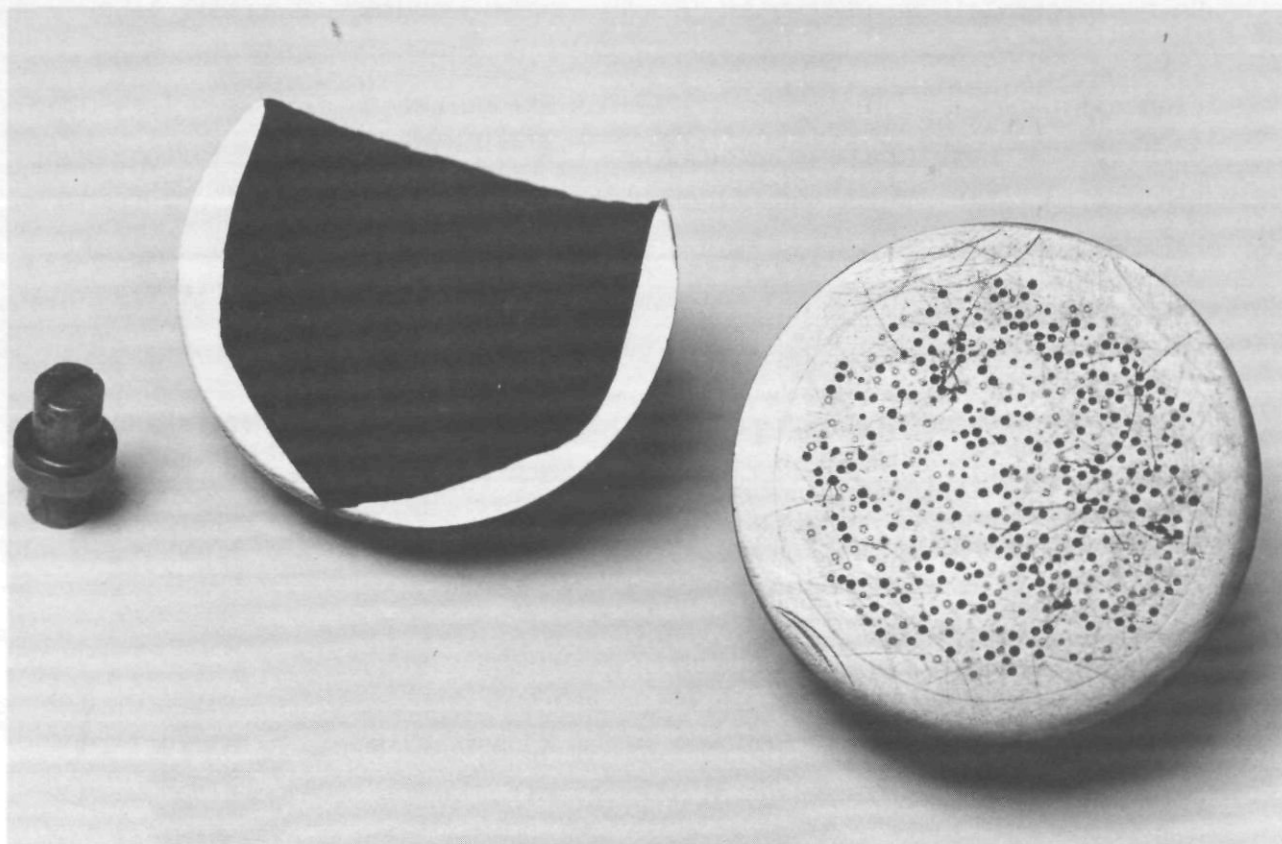


Abb. 1: 30° -Düse, Brennelementkugel bearbeitet, Brennelementkugel un-
bearbeitet

Bei einer Wiederaufarbeitung dieser Brennelemente stellt sich die Aufgabe, den ca. 20fachen Graphitanteil abzutrennen und die Brennstoffkerne durch

Aufbrechen der Siliciumcarbidhülle für die Auflösung in Salpetersäure freizulegen.

Eine Vielzahl mechanischer, chemischer und thermischer Verfahren ist hierfür vorgeschlagen worden (1). Zur praktischen Anwendung kam nur die Abtrennung des Graphits durch Verbrennen, wobei nicht unerhebliche Mengen der enthaltenen Spaltnuklide in den Abgasstrom geraten. Vermeiden läßt sich dies durch eine kürzlich untersuchte Variante (2), wonach das feingemahlene Material mitsamt dem Graphit in Salpetersäure eingebracht wird. Zufriedenstellende Uranausbeuten werden auf diese Weise erreicht, der mit Spaltprodukten hochkontaminierte Graphitschlamm dürfte aber gewisse Entsorgungsprobleme aufwerfen.

Seit einiger Zeit werden in der Grubentechnik Hochdruckwasserstrahl-Geräte zum Schneiden von Kohle eingesetzt. Diese Technik müßte sich auch sinnvoll für die Zerlegung graphitischer Brennelemente einsetzen lassen, derart, daß durch flächigen Abtrag der Graphit als Suspension fortgespült wird, während die wesentlich härteren Brennstoffpartikel unversehrt gesammelt werden können (3). Die äußere Kugelschale sollte möglichst erhalten bleiben, weil sie der Halterung dient und die äußeren 5 mm frei von Kernbrennstoff sind.

Auf diese Weise könnte auch das Spaltnuklid-Inventar nahezu vollständig in den Partikeln zurückgehalten werden. Nach Aufbrechen der Beschichtung in einem Walzenspalt kann das Material dem Auflöser zugeführt werden.

2. Aufbau der Versuchsanlage

Für die Kugel als rotationssymmetrischem Körper wurde ein axial rotierender Flachstrahl als Abtragsgeometrie gewählt. In Position gehalten wird die Kugel auf einem Vakuumsitz. Als Strahlkammer dient ein Plexiglaszylinder mit konischem Ablaufboden (siehe Abb. 2). Im Ablaufrohr werden die Brennstoffpartikel durch ein geneigtes Sieb (0,4 mm) abgefangen und in einen seitlichen Stutzen gesammelt.

Für orientierende Vorversuche und zur Optimierung der Apparatur wurden Blindkugeln identischer Graphitqualität wie die echten Brennelemente benutzt.

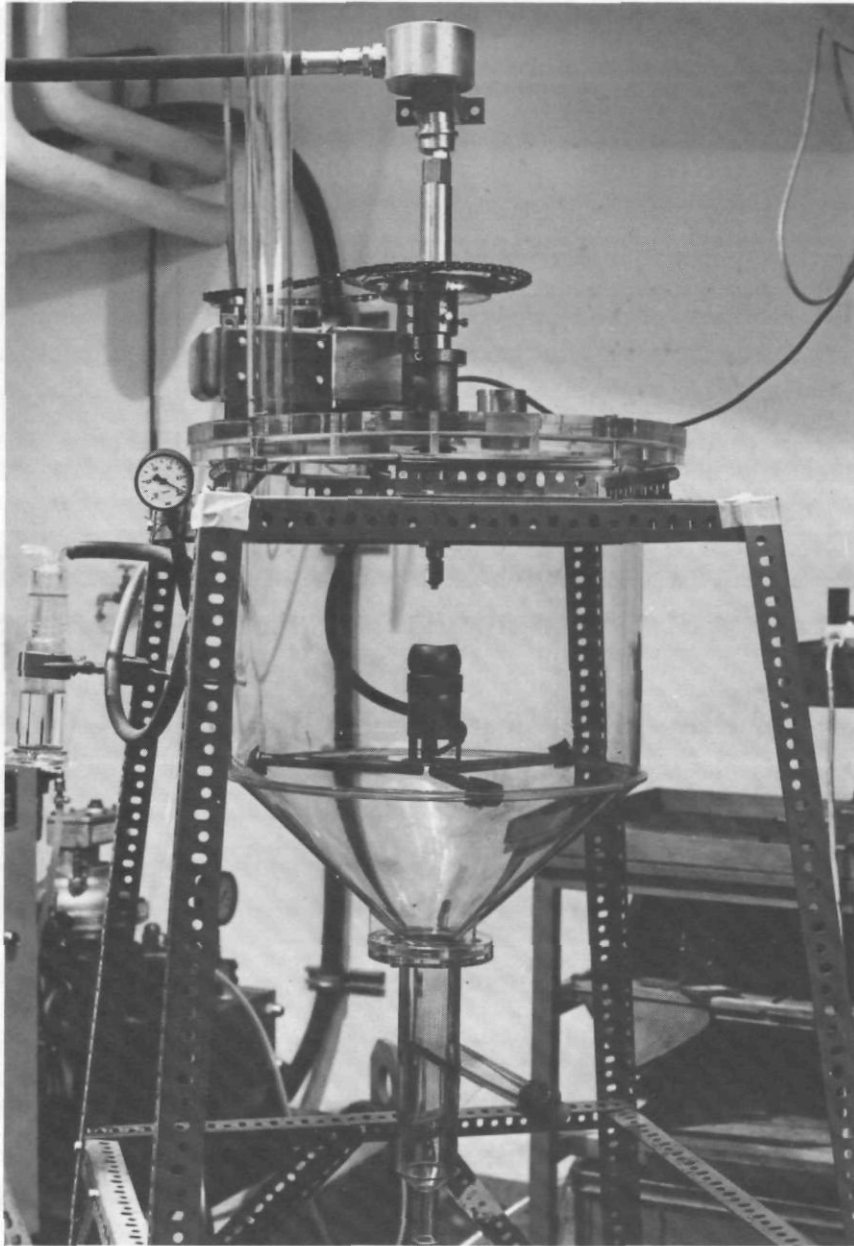


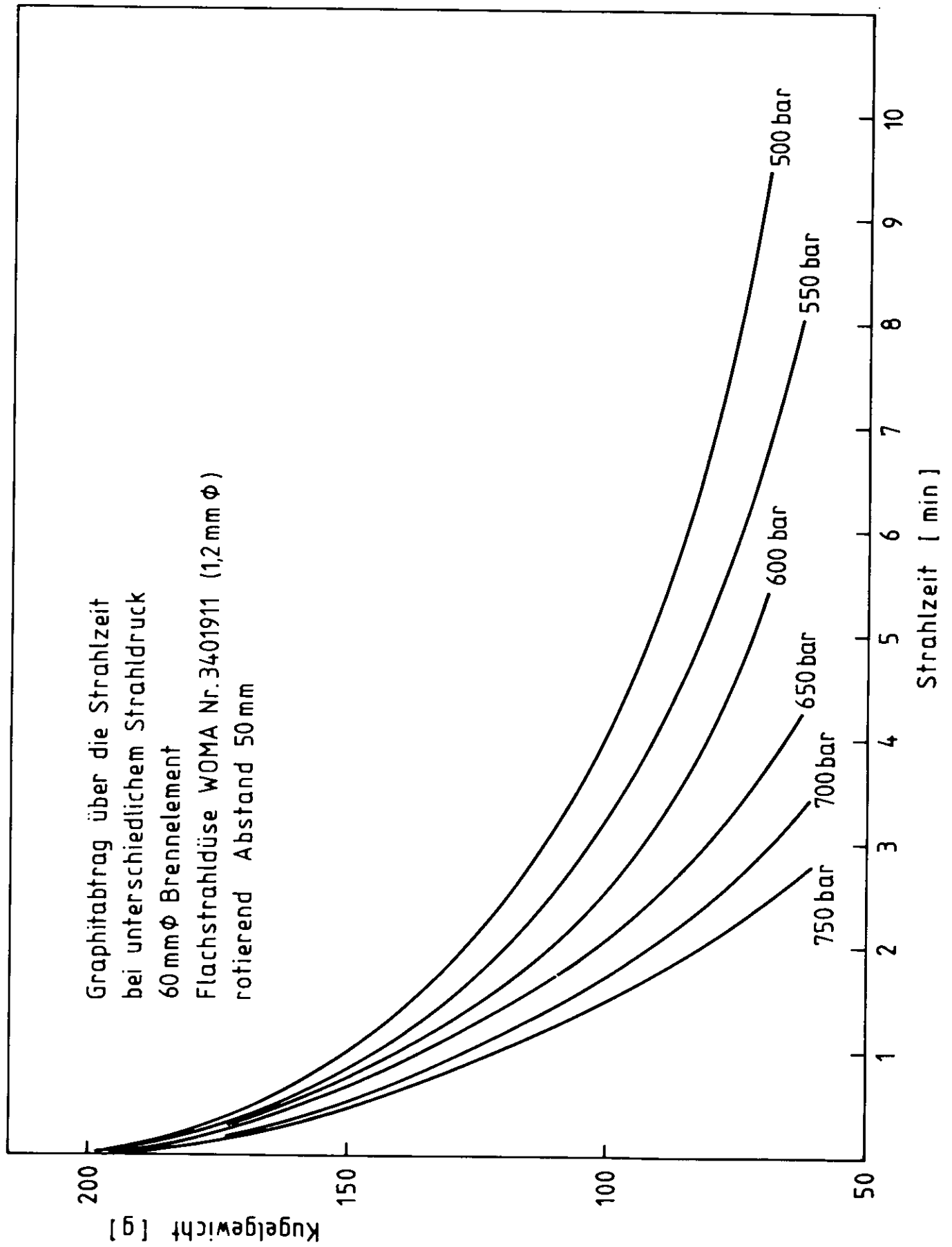
Abb. 2: Versuchsanordnung zur Wasserstrahlzerlegung graphitischer Brennelemente

Nach Austesten verschiedener Strahlkegel, Abstände und Drücke wurde gefunden, daß eine 30° Düse (Typ WOMA Nr. 3401911, 1,2 cm Ø), in 50 mm Abstand bei 600 - 700 bar die besten Ergebnisse liefert. Eine aufgeschnittene Kugel zeigt die Abtragswirkung an einem echten Brennelement. Die fast optimale Anpassung der Aushöhlungskontur an die äußere Kugelform geschieht ohne Verändern der Düseneinstellung - vermutlich unter

dem Einfluß des zunehmenden Wasser-Rückstaus. Entsprechend wird in der Anfangsphase relativ viel Graphit abgetragen (ca. 50 % in den ersten zwei Minuten), mit zunehmender Tiefe geht der Abtrag gleichmäßig zurück. Nach vollständigem Entfernen des Kernbrennstoffs kann die verbliebene Kugelschale der Abfallbehandlung zugeführt werden. Dieses Stadium könnte entweder durch wiederholte Kontrolle bei abgeschaltetem Strahl oder durch Verfolgen der Radioaktivität erkannt werden. Als brauchbarer Indikator erwies sich die Kontrolle des Vakuums an der Saughalterung. Ein millimetergroßes Loch im Kugelboden genügt, um den Unterdruck stark abfallen zu lassen. Hier einen manuellen oder automatischen Abschaltvorgang zu installieren, bietet keine Schwierigkeiten.

Der Erodierprozeß wurde in der gleichen Anordnung bei Drücken zwischen 500 und 750 bar untersucht. Die Abtragsmengen bis zum Durchbruch sind in dem Diagramm (Abb. 3) wiedergegeben. Abtragsbild und Restgewicht unterscheiden sich nicht signifikant. Da sie von Homogenität und Festigkeit der jeweiligen Kugel abhängen, wird auf detaillierte Wiedergabe verzichtet. Bei 700 und 750 bar werden teilweise noch kürzere Strahlzeiten erzielt, jedoch bei gleichzeitiger Zunahme des Ausbohrdurchmessers mit der Tiefe. Das hat zur Folge, daß der Strahl in Auflagehöhe ringförmig durchbricht, was zur Zerstörung der Auflagedichtung oder zur Zerkrümmung der Restkugel führt. Der Zeitgewinn geht (ohne Erhöhung der Bruchrate) auf Kosten einer exakten Entkernung. Aussagen über das Verhalten abgebrannter Kugeln aus dem Reaktorbetrieb sind ohne entsprechende Versuche nicht möglich. Bei langzeitbestrahlten Brennelementen ist sicherlich mit Versprödung und Gefügelockerung aller Materialien zu rechnen. Das könnte niedrigere Drücke und Strahlzeiten bedeuten. Möglicherweise aber auch höhere Bruchraten und fein verteilten Brennstoff im Graphitschlamm. Bei thermischer Graphitabtrennung wurde ein Zerplatzen der Beschichtung und Zerfall des Brennstoffkerns beobachtet. Hier bietet sich die Möglichkeit, durch Dichtentrennung oder Flotation den Graphitschlamm abzureinigen.

Ein wichtiges Kriterium des Verfahrens ist also die zuverlässige Trennung von Graphit und Kernbrennstoff. Wie bereits beschrieben, werden im Ablauf des Strahlbehälters die Brennstoffpartikel durch ein 0,4 mm Sieb zurückgehalten. Die Graphitsuspension wurde nach 12stündigem Absitzen mit empfindlichen Meßgeräten geprüft. Im Bodenschlamm war Radioaktivität nicht nachzuweisen.



3. Partikelbruch

Bereits makroskopisch ist erkennbar, daß im abgetrennten Material einige Partikel zerstört sind. Da Aufprallspuren am Plexiglasbehälter (Mattierung) nicht zu entdecken sind, dürfte der Bruch durch Zusammenstöße der Partikel untereinander entstanden sein. Die Schadensrate geht nicht parallel mit steigendem Strahldruck. So wurden bei einem 600 bar-Versuch 4 %, bei einem 700 bar-Versuch 0,6 % gefunden. Zur Ermittlung der Bruchrate wurde das Gewicht von 100 abgezählten Partikeln bestimmt. Zusammen mit der Gesamtmenge ergibt sich daraus die Gesamtpartikelzahl. Bei einer Partikelgröße von ca. 1 mm bewirkt ein 800 µm-Sieb das Aussondern der Schadfraktion (Schalen und Kerne). Durch Klopfen und Rütteln auf einem schräg gehaltenen Papier läßt man die Brennstoffkügelchen in ein Gefäß rollen und zählt sie aus. Die Zahl in Beziehung gesetzt zur Gesamtpartikelzahl ergibt so die Bruchrate.

4. Schlußfolgerung

Aus etwa 50 gefahrenen Strahlversuchen hat sich gezeigt, daß bei unbestrahlten Kugelbrennelementen zuverlässig der Kernbrennstoff vom Matrixgraphit getrennt werden kann. Die Bruchrate erreicht maximal 4 %, ohne daß Anteile davon in die Graphitfraktion gelangen. Die Strahlwassermenge, ca. 80 l pro Kugel, läßt sich durch ein Kreislaufsystem begrenzen und radioaktiv überwachen. Entsprechend den geforderten Durchsatzmengen muß ein entsprechend großer Absetztank vorgesehen werden, ggfs. ergänzt durch Filter oder Zentrifuge. Grundsätzlich ist das Pumpaggregat nur empfindlich gegenüber groben und schmirgelnden Verunreinigungen. Mitgeführte Graphitpartikel dürften auf Grund ihrer Schmierwirkung keine Probleme aufwerfen. In jedem Falle ist eine Wasserrückkühlung erforderlich, da die Strahlenergie auch in Wärme umgesetzt wird. Wie die Anlage für den technischen Einsatz auszulegen ist, ob als Band, Drehteller oder mit mehreren ortsfesten Düsen, muß anhand der praktischen Bedürfnisse und der Durchsatzleistung entschieden werden.

Welche Radioaktivität der Matrixgraphit im praktischen Betrieb durch Aktivierung und Kontamination aufweist, ist bisher nicht bekannt, so daß Abschätzungen für die Strahlenbelastung des Pumpaggregates hinsichtlich Wartung und Reparatur nicht möglich sind. Ungünstigstenfalls könnten

ein Reinigungslauf mit Frischwasser oder leicht zu wechselnde Pumpenköpfe die Wartung erleichtern. Der Graphitschlamm schließlich läßt sich durch unmittelbare Zementzugabe oder durch trockenes Verpressen mit Binderezusatz zusammen mit den Kugelresten in eine endlagergerechte Form überführen.

5. Literatur

1. H. Tischer: Chemie und Verfahrenstechnik des Head-End bei der Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen; Jül-Spez. 130, Oktober 1981
2. D. Thiele, E. Merz: Vereinfachtes Head-End-Verfahren für LEU-Brennstoff; Atomwirtschaft, Atomtechnik 2 (1986) 87 - 89
3. D. Thiele: Verfahren und Vorrichtung zur Aufarbeitung von graphitischen Kernreaktor-Brennelementen unter mechanischer Zerlegung;
DE 3131 798 C 2